

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-005204

(43)Date of publication of application : 12.01.2001

(51)Int.Cl. G03G 5/06  
C09B 5/62  
// C07D519/00

(21)Application number : 2000-136608

(71)Applicant : XEROX CORP

(22)Date of filing : 10.05.2000

(72)Inventor : HSIAO CHENG-KUO

HOR AH-MEE

DUFF JAMES M

BARANYI GIUSEPPA

ALLEN C GEOFFREY

(30)Priority

Priority number : 99 316587

Priority date : 21.05.1999

Priority country : US

## (54) PHOTOCONDUCTIVE IMAGE FORMING MEMBER

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a light-generating pigment having high photosensitivity, good dispersion stability and wide spectral sensitivity range by incorporating two or more kinds of perylenes each expressed by a specified structural formula into a perylene mixture as a charge generating material.

SOLUTION: The image forming member contains a perylene mixture as a charge generating material, and the mixture contains two or more kinds of symmetric perylenes expressed by formula I, asymmetric perylenes expressed by formula II, and asymmetric perylenes having terminal substituents R1, R2 different from each other expressed by formula III. In the formulae, each R is independent, R1 and R2 are different groups from each other, and each of R1 and R2 is a hydrogen atom or alkyl, cycloalkyl, oxalkyl, aryl, arylalkyl group or the like, X is a symmetric crosslinked part and X-Y is an asymmetric crosslinked part. The mixture preferably contains 1,3-bis(n-pentylimidoperyleneimide) propane and 1,3-bis(2-methylbutylimidoperyleneimide) propane which is the isomer corresponding to the former.



I



II



III

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than

the examiner's decision of rejection or  
application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision  
of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-5204

(P2001-5204A)

(43) 公開日 平成13年1月12日 (2001.1.12)

(51) Int.Cl.<sup>7</sup>

G 0 3 G 5/06

識別記号

3 8 0

3 1 2

C 0 9 B 5/62

// C 0 7 D 519/00

3 1 1

F I

G 0 3 G 5/06

テマコード\* (参考)

3 8 0

3 1 2

C 0 9 B 5/62

C 0 7 D 519/00

3 1 1

審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 18 頁)

(21) 出願番号 特願2000-136608 (P2000-136608)

(22) 出願日 平成12年5月10日 (2000.5.10)

(31) 優先権主張番号 09/316587

(32) 優先日 平成11年5月21日 (1999.5.21)

(33) 優先権主張国 米国 (US)

(71) 出願人 590000798

ゼロックス コーポレーション

XEROX CORPORATION

アメリカ合衆国 06904-1600 コネティ

カット州・スタンフォード・ロング リッ

チ ロード・800

(72) 発明者 チェン クオ シャオ

カナダ オンタリオ ミッシソーガ ガー

スウッド ロード 3106

(74) 代理人 100075258

弁理士 吉田 研二 (外2名)

最終頁に続く

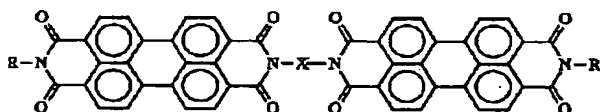
(54) 【発明の名称】 光導電性画像形成部材

(57) 【要約】

【課題】 感光度が高く、分散安定性が良く、また分光感度範囲の広い光発生顔料を提供する。

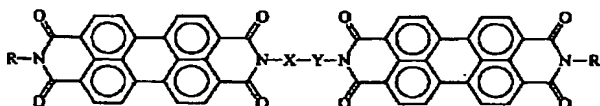
【解決手段】 電荷発生体として二量体ペリレン類の混合物を含む光導電性画像形成部材を提供する。前記混合物は、次の構造式で示されるペリレン類を2種以上含むものである。

【化1】



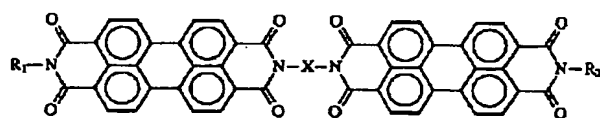
構造式 1 : 対称型ペリレン類

【化2】



構造式 2 : 非対称型ペリレン類

【化3】

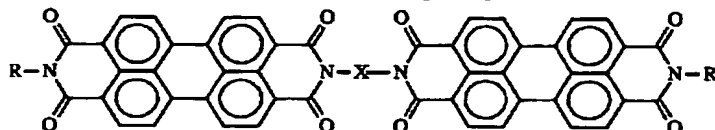


構造式 3 : 末端置換基 R<sub>1</sub> 及び R<sub>2</sub> が異なる非対称型ペリレン類

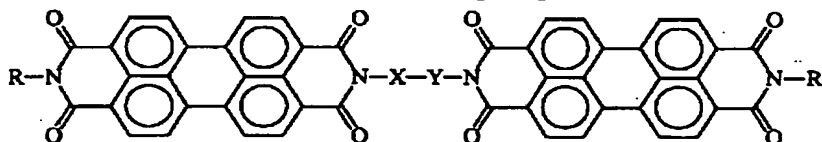
このとき、R は、水素、アルキル、シクロアルキル、オキサアルキル、置換アルキル、アリール、置換アリール、アラールキル、又は置換アラールキルであり、X は対称型架橋部分であり、X-Y は非対称型架橋部分を示すものである。

## 【特許請求の範囲】

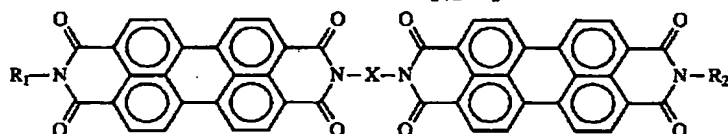
【請求項1】 電荷発生体としてペリレン類混合物を含む光導電性画像形成部材であって、前記混合物が、次の構造式で示されるペリレン類を2種以上含み、このとき、Rが各々独立して、水素、アルキル、シクロアルキル、オキサアルキル、置換アルキル、アリール、置換アリール、アリールアルキル、又は置換アリールアルキル



構造式1：対称型ペリレン類



構造式2：非対称型ペリレン類

構造式3：末端置換基R<sub>1</sub>及びR<sub>2</sub>が異なる非対称型ペリレン類

【請求項2】 請求項1に記載の画像形成部材であって、

前記混合物が、1, 3-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)プロパンと、その対応する異性体である1, 3-ビス(2-メチルブチルイミドペリレンイミド)プロパンとを含むことを特徴とする画像形成部材。

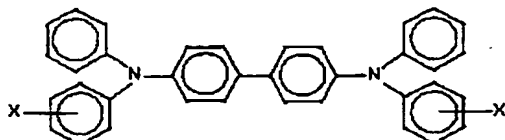
【請求項3】 請求項1に記載の画像形成部材であって、

前記混合物が、1, 3-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)プロパンと、その異性体である1, 3-ビス(2-メチルブチルイミドペリレンイミド)プロパンと、1-(n-ペンチルイミドペリレンイミド)-3-(2-メチルブチルイミドペリレンイミド)プロパンとを含むことを特徴とする画像形成部材。

【請求項4】 請求項1に記載の画像形成部材であって、

電荷輸送層が、Xがアルキル又はハロゲンである、化4の構造式で示されるアリールアミン分子を含むことを特徴とする画像形成部材。

## 【化4】



【請求項5】 請求項1に記載の画像形成部材であって、

前記混合物が、(1) 1, 3-ビス(n-ブチルイミド

ペリレンイミド)プロパンと、1, 3-ビス(2-イソブチルイミドペリレンイミド)プロパン、(2) 1, 3-ビス(n-ブチルイミドペリレンイミド)プロパンと、1, 3-ビス(n-ヘキシルイミドペリレンイミド)プロパン、(3) 1, 3-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)プロパンと、1, 5-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)-2-メチルペンタン、(4) 1, 5-ビス(n-ブチルイミドペリレンイミド)-2-メチルペンタンと、1, 5-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)-2-メチルペンタン、(5) 1, 3-ビス(n-プロピルイミドペリレンイミド)プロパンと、1, 3-ビス(n-ブチルイミドペリレンイミド)プロパンと、1, 3-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)プロパン、(6) 1, 4-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)ブタンと、1, 4-ビス(2-メチルブチルイミドペリレンイミド)ブタンと、1-(n-ペンチルイミドペリレンイミド)-4-(2-メチルブチルイミドペリレンイミド)ブタン、(7) 1, 4-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)ブタンと、1, 4-ビス(2-メチルブチルイミドペリレンイミド)ブタンと、1-(n-ペンチルイミドペリレンイミド)-4-(2-メチルブチルイミドペリレンイミド)ブタン、(8) 1, 3-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)プロパンと、1, 3-ビス(2-メチルブチルイミドペリレンイミド)プロパンと、1, 4-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)ブタン、(9) 1, 3-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)プロパンと、その異性体である1, 3-ビス(2-メチルブチルイミドペリレンイミド)プロ

## 【化1】

## 【化2】

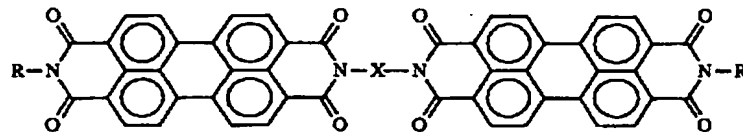
## 【化3】

ドペリレンイミド)プロパンと、1, 3-ビス(2-イソブチルイミドペリレンイミド)プロパン、(2) 1, 3-ビス(n-ブチルイミドペリレンイミド)プロパンと、1, 3-ビス(n-ヘキシルイミドペリレンイミド)プロパン、(3) 1, 3-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)プロパンと、1, 5-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)-2-メチルペンタン、(4) 1, 5-ビス(n-ブチルイミドペリレンイミド)-2-メチルペンタンと、1, 5-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)-2-メチルペンタン、(5) 1, 3-ビス(n-プロピルイミドペリレンイミド)プロパンと、1, 3-ビス(n-ブチルイミドペリレンイミド)プロパンと、1, 3-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)プロパン、(6) 1, 4-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)ブタンと、1, 4-ビス(2-メチルブチルイミドペリレンイミド)ブタンと、1-(n-ペンチルイミドペリレンイミド)-4-(2-メチルブチルイミドペリレンイミド)ブタン、(7) 1, 4-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)ブタンと、1, 4-ビス(2-メチルブチルイミドペリレンイミド)ブタンと、1-(n-ペンチルイミドペリレンイミド)-4-(2-メチルブチルイミドペリレンイミド)ブタン、(8) 1, 3-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)プロパンと、1, 3-ビス(2-メチルブチルイミドペリレンイミド)プロパンと、1, 4-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)ブタン、(9) 1, 3-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)プロパンと、その異性体である1, 3-ビス(2-メチルブチルイミドペリレンイミド)プロ

パンと、1, 3-ビス (n-ブチルイミドペリレンイミド) プロパンと、その異性体である 1, 3-ビス (イソブチルイミドペリレンイミド) プロパン、(10) 1, 3-ビス (n-プロピルイミドペリレンイミド) プロパンと、1, 3-ビス (n-ブチルイミドペリレンイミド) プロパンと、1, 3-ビス (n-ペンチルイミドペリレンイミド) プロパンと、1, 3-ビス (n-ヘキシルイミドペリレンイミド) プロパン、又は、(11) 1, 3-ビス (n-ペンチルイミドペリレンイミド) プロパンと、1, 3-ビス (n-ペンチルイミドペリレンイミド) プロパンと、1, 5-ビス (n-ブチルイミドペリレンイミド) -2-メチルペンタンと、1, 5-ビス (n-ペンチルイミドペリレンイミド) -2-メチルペンタン、を含むことを特徴とする画像形成部材。

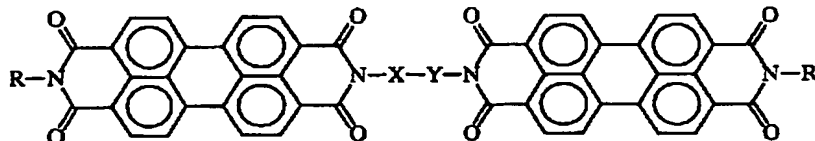
【請求項 6】 請求項 1 に記載の画像形成部材であって、

前記混合物が、構造式 1 で示されるペリレン類を約 1 ~



構造式 1 : 対称型ペリレン二量体

このとき、R は、例えば、水素、アルキル、シクロアルキル、オキサアルキル、置換アルキル、アリール、置換アリール、アラールキル又はアリールアルキル、置換アラールキル又はアリールアルキル等であり、二つの R は望ましくは同じ置換基であり、X は対称型架橋部分で、X が無い場合には、N-N 単結合である。つまり X は対称型の基であり、あるいは X は (X)<sub>n</sub> であって、n は基の数を示し、0 又は 1 である。X は例えば、アルキレン、置換アルキレン、シクロアルキレン、アリーレン、置換アリーレン、アラールキレン、置換アラールキレン等である。アルキルは、例えば、炭素数 1 ~ 約 25、望ましくは 1 ~ 約 10 の直鎖及び分枝基であり、メチル、エチル、プロピル、ブチル、ペンチル、ヘプチル、オクチル、デシルなどである。アルキレンは、例えば、炭素数 1 ~ 約 25、望ましくは 2 ~ 約 12 の、エチレン、トリメチレン、テトラメチレン、ペンタメチレン、ヘキサメチレン、オクタメチレン、ドデカメチレンなどの基であ



構造式 2 : 非対称型架橋を持つ非対称型ペリレン二量体  
これについては、その内容を全て本件に引用して援用する、米国特許第 5, 683, 842 号、米国特許第 5, 756, 744 号を参照されたい。このとき、R は、例えば、水素、アルキル、シクロアルキル、オキサアルキル、置換アルキル、アリール、置換アリール、アラールキル又はアリールアルキル、置換アラールキル又はアリール

約 5 種と、構造式 2 で示されるペリレン類を約 1 ~ 約 5 種と、構造式 3 で示されるペリレン類を約 1 ~ 約 5 種含むことを特徴とする画像形成部材。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は一般に、二量体形ペリレン類に関するものである。詳細に述べるならば、本発明は、2 種以上、例えば約 2 ~ 約 10 種、望ましくは 2 ~ 約 5 種、より望ましくは 2 種の、ペリレンビスイミド二量体の混合物を含む光導電性画像形成部材に関するものである。各二量体は、本質的に構造式 1、2、及び 3 で示される。これについては、米国特許第 5, 645, 965 号、米国特許第 5, 683, 842 号、米国特許第 5, 756, 744 号を参照されたい。

【0002】

【化 5】

る。なお本件では、以後、炭素鎖の長さには「例えば」の意を含むものとする。アルキレンは、アルキルやアルコキシなどの、影響を及ぼす既知の基で置換することができる。アルキルは、炭素数約 1 ~ 約 25 の、メチル、エチル、プロピル、ブチル等であり、アルコキシは、例えば炭素数約 1 ~ 約 25 の、メトキシ、エトキシ、プロポキシ、ブトキシ等である。アリーレンは、炭素数 6 ~ 約 24 の基であり、フェニレン、ナフチレンなど、より詳しくは、1, 3-, 1, 4-フェニレン、1, 4-, 1, 5-, 1, 6-, 2, 7-ナフチレン等であり、またこれらのアリーレンは、例えばアルキル (メチル、エチルなど) 等の置換基を持つことができる。本件に述べるアリール及び他の置換基は公知であり、また実施の形態においてより詳細に述べるが、これらに限定されるものではない。

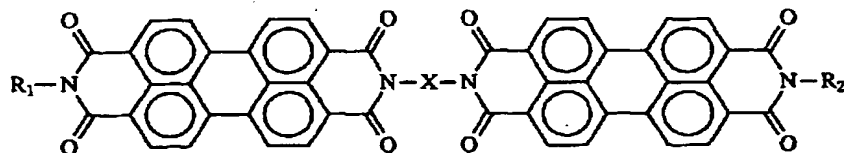
【0003】

【化 6】

アルキル等であり、二つの R は望ましくは同じ置換基であり、X-Y は、非対称型のアルキレン、置換アルキレン、アリーレン、置換アリーレン、置換アラールキレンなどの、非対称型架橋部分を示す。アルキルは、炭素数 1 ~ 約 25、望ましくは 1 ~ 約 10 の直鎖及び分枝基であり、メチル、エチル、プロピル、ブチル、ペンチル、ヘプチル、オクチル、デシルなどである。シクロアルキル

は、シクロプロパンからシクロドデカンまでの同族の環である。置換アルキル基には、ヒドロキシ、アルコキシ、カルボキシ、シアノ、ジアルキルアミノ等の置換基が含まれる。アリールは、フェニル、ナフチル、ピフェニル、ターフェニル等の炭素数6～約24の基である。置換アリール基は、メチル、tert-ブチル、ハロゲン（フッ素、塩素、臭素、ヨウ素）、ヒドロキシ、メトキシなどのアルコキシ、ニトロ、シアノ、ジメチルアミノなどのジアルキルアミノ等の置換基を、望ましくは約1～約5個含むものである。アラルキルは、ベンジル、フェネチル、フルオレニル等の、炭素数7～約24の構成要素を含むものである。置換アラルキル基は、アリールと同様の置換基、例えばメチル、tert-ブチル、ハロゲン、ヒドロキシ、メトキシ、ニトロ、ジアルキルアミノを含むことができる。

【0004】非対称型アルキレンの例としては、1, 2-エチレン、1-メチル-1, 3-プロピレン、1-エチル-1, 3-プロピレン、1-メチル-1, 4-テトラメチレン、2-メチル-1, 4-テトラメチレン、1-メチル-1, 5-ペンタメチレン、2-メチル-1, 5-ペンタメチレン、及びそれ以上の、炭素数約20までの非対称型アルキレン基が挙げられる。非対称型置換アルキレンの例としては、3-ヒドロキシ-1, 2-エチレン、2-ヒドロキシ-1, 4-テトラメチレン、



構造式3：異なる末端置換基を持つ非対称型ペリレン二量体

これについては、その内容を全て本件に引用して援用する、共に出願中の米国特許出願第09/165, 595号を参照されたい。このとき、R<sub>1</sub>とR<sub>2</sub>とは望ましくは異なる基であって、水素、アルキル、シクロアルキル、オキサアルキル、置換アルキル、アリール、置換アリール、アラルキル又はアリーラルキル、置換アラルキル又はアリーラルキル等である。Xは、先に述べたように、例えば、対称型架橋部分であり、Xが無い場合にはN-N単結合、あるいはXは(X)<sub>n</sub>であって、nは基の数を示し、より詳しくは0又は1である。Xは、アルキレン、置換アルキレン、シクロアルキレン、アリーレン、置換アリーレン、アラルキレン、置換アラルキレン等である。アルキレンは、炭素数1～約25、望ましくは2～約12の、エチレン、トリメチレン、テトラメチレン、ペンタメチレン、ヘキサメチレン、オクタメチレン、ドデカメチレンなどの基である。アルキレンは、メチルなどのアルキルや、アルコキシ等の、影響を及ぼす既知の基で置換することができる。アリーレンは、1, 3-, 1, 4-フェニレン、1, 4-, 1, 5-, 1,

2-メトキシ-1, 4-テトラメチレン、2-カルボキシ-1, 4-テトラメチレン、2-ジメチルアミノ-1, 4-テトラメチレンなどが挙げられる。アリーレンは、例えば、2, 4-, 2, 3'-, 2, 4'-, 3, 4'-ビフェニレン、1, 3-, 1, 6-, 1, 7-ナフチレンなどの、非対称型に結合する架橋基であり、置換アリーレンは、例えば、2-クロロ-1, 4-フェニレン、2-メチル-4, 4'-ビフェニレン、N-フェニルベンズアミド-3, 4'-ジイル、ジフェニルスルホン-3, 4'-ジイル、ジフェニルエーテル-3, 4'-ジイルなどである。アラルキレンの例は、一つのペリレンビスイミド部分がアルキル基と化学結合し、二つ目のペリレンビスイミド部分が芳香環の2-, 3-又は4-位に化学結合している、ベンジル、フェネチル、フェニルプロピル、フルオレニル基である。置換アラルキレン基の例には、メチル、tert-ブチル、ハロゲン（フッ素、塩素、臭素、ヨウ素）、ヒドロキシ、メトキシなどのアルコキシ、ニトロ、シアノ、ジメチルアミノなどのジアルキルアミノ等の置換基が含まれ、これらの基は芳香環、より詳しくはフェニル環に結合している。

【0005】

【化7】

6-, 2, 7-ナフチレンなどの炭素数6～約24の基であり、またこれらのアリーレンは、例えばアルキル（メチル、エチルなど）等の置換基を持つことができる。アリール及び他の置換基は公知であり、また実施の形態においてより詳細に述べるが、これらに限定されるものではない。

【0006】各々のペリレン二量体は光導電性であって、光導電性画像形成部材の製造に使用できるが、幾つかの例において、感光度が低い、分光感度範囲が狭い、分散性が悪い等の欠点があるため、画像形成部材としての使用に限られる。実施の形態において、本発明の部材では2種以上のペリレン二量体の混合物を光発生層に用いることにより、これらの欠点を克服し、あるいは最小とし、また感光度を上げることができる。詳細に述べるならば、ペリレン混合物は、構造式1の対称型ペリレン二量体を2種以上含むものである。また構造式3において、ペリレンが、R<sub>1</sub>が異なり、R<sub>2</sub>とも同一ではない、R<sub>1</sub>-ペリレン-X-ペリレン-R<sub>1</sub>と、R<sub>2</sub>-ペリレン-X-ペリレン-R<sub>2</sub>の場合である。本件に述べる混合物は通常、各成分単独よりも感光度が高い。また混合物は、対称型（構造式1）と、非対称型（構造式2及び

3) のペリレン二量体を含むこともできる。例えば、R-ペリレン-X-ペリレン-R (構造式1) と、R<sub>1</sub>-ペリレン-X-ペリレン-R<sub>2</sub> (構造式3) との混合物である。

【0007】更に、ペリレン二量体混合物を用いることにより、感光度を上げ、分散安定性を向上し、分光感度範囲を大きくするなど、光発生顔料の物理的特性を調整及び設計する際の許容範囲を広げることができる。

【0008】更に詳細に述べるならば、本発明は、光発生成分として、望ましくは化学構造が互いに異性体である、2種以上のペリレン二量体の混合物を含む、光導電性画像形成部材に関するものである。例えば、光発生混合物は、R<sub>1</sub>とR<sub>2</sub>とが異性等価体である、R<sub>1</sub>-ペリレン-X-ペリレン-R<sub>1</sub>とR<sub>2</sub>-ペリレン-X-ペリレン-R<sub>2</sub>などの、二つの関連する異性体を含むことができる。特定の混合物の例では、各ペリレンを約5〜約95重量%、望ましくは約25〜約75重量%とし、より詳しくは、1, 3-ビス (n-ペンチルイミドペリレンイミド) プロパンと、その異性体である1, 3-ビス (2-メチルブチルイミドペリレンイミド) プロパン、また、3種の異性体二量体、R<sub>1</sub>-ペリレン-X-ペリレン-R<sub>1</sub>と、R<sub>2</sub>-ペリレン-X-ペリレン-R<sub>2</sub>と、R<sub>1</sub>-ペリレン-X-ペリレン-R<sub>2</sub>とである。ある特定の混合物の例は、各成分を約5〜約90重量%、望ましくは約25〜約50重量%含む、1, 3-ビス (n-ペンチルイミドペリレンイミド) プロパンと、1, 3-ビス (2-メチルブチルイミドペリレンイミド) プロパンと、1- (n-ペンチルイミドペリレンイミド) -3- (2-メチルブチルイミドペリレンイミド) プロパンとである。

【0009】更に、実施の形態において、ペリレン混合物は、プラスチック製品、電子写真トナーなどの高分子複合材料の着色料として使用できる。更にペリレン二量体顔料は、非常に色が濃く、また例えばRやXの構造により、オレンジ、赤、マゼンタ、栗色、茶、黒、緑がかった黒など、様々な色相とすることができる。

【0010】本発明の光発生顔料混合物を用いた画像形成部材は、波長約400〜約800nm、つまり光スペクトルの可視及び近赤外領域に亘って感度を持つ。また本発明の画像形成部材は、後に述べるように、一般に白色光に幅広い分光感度を持ち、長いサイクル時間の間も安定した電気的特性を保つものである。

【0011】

【発明が解決しようとする課題】幾つかの例において、より高い電荷受容性、より低い暗失活、より高い電荷発生効率及び電荷輸送層への電荷注入、様々な電子写真法を可能とする任意のPIDC曲線の形状、より少ない残留電荷及び／又はより少ない消去エネルギー、より優れた長期サイクル性能、温度及び相対湿度の環境変化に対するより少ない性能変動などの、より優れた電子写真に

おける電気的性能を備えた、光導電性素子を含む画像形成部材が必要とされている。また、ポリマーや溶媒中での分散性の良い、ある種の二量体ペリレン光発生顔料混合物を含む、光導電性素子を用いた画像形成部材も必要とされている。更に、コロイド状に安定で、沈殿が生じない、あるいは、例えば攪拌せずに20〜30日置いても僅かしか沈殿しない、特に浸漬塗布法に適した被覆用分散液とすることのできる光発生顔料が必要とされている。また、ポリマーや溶媒中での分散性に優れ、光導電性画像形成部材の製造において低コストの被覆法が可能である光導電性材料が必要とされている。最も重要なのは、光導電体の様々な所望の性能要求に応えるため、光発生組成物の物理的特性の調整が必要とされていることである。例えば、赤色のダイオードや気体レーザーで画像を形成するには、光スペクトルの赤色領域に優れた感光度を持つ画像形成部材が得られるような、光導電性材料が必要である。更にまた、最近開発された青色及び緑色の電子画像形成光源での画像形成を可能とするため、スペクトルの青色及び緑色領域に分光感度を持つ光発生顔料が必要とされている。また、光レンズ法を用いるカラーコピーのための、約400〜約800nmと幅広い分光感度を持つ、より優れた全色性顔料も必要とされている。

【0012】

【課題を解決するための手段】本発明の特徴は、より優れた光導電性を持つ新しい光導電性素子を備えた画像形成部材と、可視領域に分光感度を持つ有機性で無毒又は殆ど無毒のペリレン混合物を提供することである。

【0013】本発明の特徴は、実施の形態において、ペリレンビスイミド二量体混合物から成る光発生顔料を含んだ光発生層と、支持層とを含む、多層型画像形成部材を形成することにより達成される。ペリレンビスイミド二量体は、構造式1、2、及び3で示される物質であって、R<sub>1</sub>などの置換基、X、Y、nは、本件及び、米国特許第5, 756, 744号、米国特許第5, 683, 842号と第5, 645, 965号の一部に述べられているとおりである。更に詳しく述べるならば、この構造式において、Rは、水素、アルキル、オキサアルキル、アリール、アリールアルキル等であり、Xは、N-N単結合 (つまり、Xは存在しない)、又は対称型のアルキレン、シクロアルキレン、アリーレン、又はアラルキレン架橋基であり、X-Yは、非対称型のアルキレン、アリーレン、又はアラルキレンなどの非対称型架橋部分である。

【0014】

【発明の実施の形態】本発明の様態は、以下のとおりである。電荷発生体としてペリレン混合物を含み、この混合物が、本件に述べる構造式で示されるペリレン類を2種以上含むものである光導電性画像形成部材；ペリレン混合物が、1, 3-ビス (n-ペンチルイミドペリレン

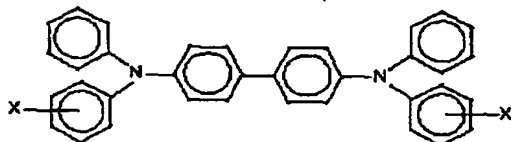
イミド) プロパンと、その対応する異性体である1, 3-ビス(2-メチルブチルイミドペリレンイミド) プロパンを含む画像形成部材; 各ペリレンの含有比が約1:1である画像形成部材; 1, 3-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド) プロパンの含有量が約5~約95部又は重量%であり、1, 3-ビス(2-メチルブチルイミドペリレンイミド) プロパンの含有量が約95~約5部又は重量%であり、ペリレン類の総量が100部又は重量%である画像形成部材; 1, 3-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド) プロパンの含有量が約40~約60部であり、1, 3-ビス(2-メチルブチルイミドペリレンイミド) プロパンの含有量が約60~約40部であり、2種のペリレン類の総量が100部である画像形成部材; 混合物が、1, 3-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド) プロパンと、その異性体である1, 3-ビス(2-メチルブチルイミドペリレンイミド) プロパンと、1-(n-ペンチルイミドペリレンイミド)-3-(2-メチルブチルイミドペリレンイミド) プロパンを含む画像形成部材; 各ペリレンの含有量が約5~約90部又は重量%であり、その合計が約100部又は重量%である画像形成部材; 各ペリレンの含有量が約25~約50部である画像形成部材; 1, 3-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド) プロパンの含有量が約25部であり、1, 3-ビス(2-メチルブチルイミドペリレンイミド) プロパンの含有量が約25部であり、1-(n-ペンチルイミドペリレンイミド)-3-(2-メチルブチルイミドペリレンイミド) プロパンの含有量が約50部であり、3種のペリレン類の合計が約100部である画像形成部材; アルキルが1~約25の炭素原子を含み、アリールが約6~約24の炭素原子を含み、アラルキルが約7~約30の炭素原子を含む画像形成部材; アルキルが、メチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、イソブチル、sec-ブチル、2-メチルブチル、3-メチルブチル(別名: イソペンチル)、n-ペンチル、2-ペンチル(1-メチルブチル)、3-ペンチル(別名: 1-エチルプロピル)、ネオペンチル、n-ヘキシル、n-ヘプチル、n-オクチル、n-ノニル、又はn-デシルである画像形成部材; シクロアルキルが、シクロプロピル、シクロブチル、シクロヘキシル、シクロヘプチル、シクロオクチル、又はシクロデシルである画像形成部材; オキサアルキルが、2-メトキシエチル、3-メトキシプロピル、3-エトキシプロピル、又は4-メトキシブチルである画像形成部材; 置換アルキルが、2-ヒドロキシエチル、3-ヒドロキシプロピル、4-ヒドロキシブチル、5-ヒドロキシペンチル、6-ヒドロキシヘキシル、カルボキシメチル、2-カルボキシエチル、3-カルボキシプロピル、4-カルボキシブチル、5-カルボキシペンチル、又は6-カルボキシヘキシルである画像形成部材; アリールが、フェニル、2-, 3-, 4-フェニル

フェニル、又は2-ナフチルである画像形成部材; 置換アリールが、2-, 3-, 4-ヒドロキシフェニル、2-, 3-, 4-メチルフェニル、2-, 3-, 4-tert-ブチルフェニル、2-, 3-, 4-メトキシフェニル、2-, 3-, 4-ハロゲン化フェニル(ハロゲンは、フッ素、塩素、臭素、又はヨウ素)、2-, 3-, 4-ニトロフェニル、又は2-, 3-, 4-ジメチルアミノフェニルである画像形成部材; アラルキルが、ベンジル、フェネチル、又は3-フェニルプロピルである画像形成部材; 構造式1及び3のXが(X)<sub>n</sub>であり、このときnが基の数を示すものである画像形成部材; Xが、アルキレン、置換アルキレン、シクロアルキレン、アリーレン、置換アリーレン、アラルキレン、又は置換アラルキレンであり、X-Yが、アルキレン、置換アルキレン、アリーレン、置換アリーレン、アラルキレン、又は置換アラルキレンである画像形成部材; アルキレンが、エチレン、1, 3-プロピレン、1, 4-テトラメチレン、1, 5-ペンタメチレン、1, 6-ヘキサメチレン、1, 7-ヘプタメチレン、1, 8-オクタメチレン、1, 9-ノナメチレン、1, 10-デカメチレン、1, 12-ドデカメチレン、1, 15-ペンタデカメチレン、又は1, 20-エイコサメチレンである画像形成部材; Rが、水素、アルキル、シクロアルキル、置換アルキル、アリール、置換アリール、アラルキル、又は置換アラルキル基であって、Xが、1, 3-プロピレン、2-ヒドロキシ-1, 3-プロピレン、2-メトキシ-1, 3-プロピレン、2-メチル-1, 3-プロピレン、又は2, 2-ジメチル-1, 3-プロピレンである、あるいは、Rが、メチル、エチル、n-プロピル、n-ブチル、n-ペンチル、n-ヘキシル、n-ヘプチル、又はn-オクチルであって、Xが、窒素-窒素単結合、エチレン、1, 4-テトラメチレン、1, 5-ペンタメチレン、1, 6-ヘキサメチレン、1, 7-ヘプタメチレン、1, 8-オクタメチレン、1, 9-ノナメチレン、1, 10-デカメチレン、1, 11-ウンデカメチレン、又は1, 12-ドデカメチレンである、あるいは、Rが、メチル、エチル、n-プロピル、n-ブチル、n-ペンチル、n-ヘキシル、n-ヘプチル、又はn-オクチルであって、Xが、1, 3-プロピレン、2-ヒドロキシ-1, 3-プロピレン、2-メトキシ-1, 3-プロピレン、2-メチル-1, 3-プロピレン、又は2, 2-ジメチル-1, 3-プロピレンである、あるいは、Rが、イソプロピル、イソブチル、sec-ブチル、2-メチルブチル、3-メチルブチル(別名: イソペンチル)、2-(3-メチル)ブチル(別名: 1, 2-ジメチルプロピル)、2-ペンチル(別名: 1-メチルブチル)、3-ペンチル(別名: 1-エチルプロピル)、ネオペンチル、又はシクロペンチルであって、Xが、1, 3-プロピレン、2-ヒドロキシ-1, 3-プロピレン、2-メトキシ-1, 3-プロピレン



ン、2-メチル-1, 3-プロピレン、又は2, 2-ジメチル-1, 3-プロピレンである、あるいは、Rが、2-ヒドロキシエチル、3-ヒドロキシプロピル、4-ヒドロキシブチル、5-ヒドロキシペンチル、6-ヒドロキシヘキシル、2-メトキシエチル、3-メトキシプロピル、又は4-メトキシブチルであって、Xが、1, 3-プロピレン、2-ヒドロキシ-1, 3-プロピレン、2-メトキシ-1, 3-プロピレン、2-メチル-1, 3-プロピレン、又は2, 2-ジメチル-1, 3-プロピレンである画像形成部材；支持層が、金属、伝導性ポリマー、又は絶縁性ポリマーを含み、支持層の厚さが約30～約300 $\mu\text{m}$ であり、必要に応じて、厚さ約0.01～約1 $\mu\text{m}$ の導電層を上塗りしたものである画像形成部材；支持層がアルミニウムを含み、部材上に更にポリマーを含む上塗り最上層を備えた画像形成部材；光発生体顔料混合物を、樹脂性バインダ中に約5～約95重量%分散させた画像形成部材；樹脂性バインダが、ポリエステル、ポリビニルカルバゾール、ポリビニルブチラール、ポリカーボネート、ポリエーテルカーボネート、アリールアミン重合体、スチレン共重合体、又はフェノキシ樹脂である画像形成部材；電荷輸送層に、アリールアミン分子又はアリールアミン重合体が含まれる画像形成部材；電荷輸送層に、Xがアルキル又はハロゲンである、化8の構造式のアリールアミン分子が含まれる画像形成部材；

【化8】



アリールアミンが、ポリカーボネート、ポリエステル、又はビニルポリマーであるポリマーに分散されている画像形成部材；光発生層の厚さが約1～約10 $\mu\text{m}$ である画像形成部材；電荷輸送層の厚さが約10～約100 $\mu\text{m}$ である画像形成部材；画像形成部材の支持層が、厚さ約0.01～約1 $\mu\text{m}$ のポリマー性接着層で上塗りされている画像形成部材；電荷輸送層が支持層と光発生層との間にある、あるいは光発生層が支持層と電荷輸送層の間にある画像形成部材；本件に述べるペリレン光導電性画像形成部材上に潜像を形成する工程と、画像を被印刷体に転写する工程と、必要に応じて画像を被印刷体に定着する工程とを含む画像形成法；本発明のペリレン光導電性画像形成部材上に潜像を形成する工程と、樹脂と着色料とを含むトナー組成物を用いて画像を現像する工程と、画像を被印刷体に転写する工程と、必要に応じて画像を被印刷体に定着する工程とを含む画像形成法；非対称型架橋部分が、アルキレン、置換アルキレン、アリーレン、置換アリーレン、アラルキレン、又は置換アラルキレンである画像形成部材；ペリレン混合物が、(1)

1, 3-ビス(n-ブチルイミドペリレンイミド)プロパンと、1, 3-ビス(2-イソブチルイミドペリレンイミド)プロパン、(2) 1, 3-ビス(n-ブチルイミドペリレンイミド)プロパンと、1, 3-ビス(n-ヘキシルイミドペリレンイミド)プロパン、(3) 1, 3-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)プロパンと、1, 5-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)-2-メチルペンタン、(4) 1, 5-ビス(n-ブチルイミドペリレンイミド)-2-メチルペンタンと、1, 5-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)-2-メチルペンタン、(5) 1, 3-ビス(n-プロピルイミドペリレンイミド)プロパンと、1, 3-ビス(n-ブチルイミドペリレンイミド)プロパンと、1, 3-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)プロパン、(6) 1, 4-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)ブタンと、1, 4-ビス(2-メチルブチルイミドペリレンイミド)ブタンと、1-(n-ペンチルイミドペリレンイミド)-4-(2-メチルブチルイミドペリレンイミド)ブタン、(7) 1, 4-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)ブタンと、1, 4-ビス(2-メチルブチルイミドペリレンイミド)ブタンと、1-(n-ペンチルイミドペリレンイミド)-4-(2-メチルブチルイミドペリレンイミド)ブタン、(8) 1, 3-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)プロパンと、1, 3-ビス(2-メチルブチルイミドペリレンイミド)プロパンと、1, 4-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)ブタン、(9) 1, 3-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)プロパンと、その異性体である1, 3-ビス(2-メチルブチルイミドペリレンイミド)プロパンと、1, 3-ビス(n-ブチルイミドペリレンイミド)プロパンと、その異性体である1, 3-ビス(イソブチルイミドペリレンイミド)プロパン、(10) 1, 3-ビス(n-プロピルイミドペリレンイミド)プロパンと、1, 3-ビス(n-ブチルイミドペリレンイミド)プロパンと、1, 3-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)プロパンと、1, 3-ビス(n-ヘキシルイミドペリレンイミド)プロパン、又は、(11) 1, 3-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)プロパンと、1, 3-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)プロパンと、1, 5-ビス(n-ブチルイミドペリレンイミド)-2-メチルペンタンと、1, 5-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)-2-メチルペンタン、を含むものである部材；(1)の各成分の含有量が約5～約95重量%であり、成分の合計が約100重量%である画像形成部材；(1)の各成分の含有量が約25～約75重量%であり、成分の合計が約100重量%である画像形成部材；(2)の各成分の含有量が約5～約95重量%であり、成分の合計が約100重量%である画像形成部材；(2)の各成分の含有量が約25～約75重量%で

あり、成分の合計が約100重量%である画像形成部材；(3)の各成分の含有量が約5～約90重量%であり、成分の合計が約100重量%である画像形成部材；(3)の各成分の含有量が約25～約50重量%であり、成分の合計が約100重量%である画像形成部材；(4)の各成分の含有量が約5～約95重量%であり、成分の合計が約100重量%である画像形成部材；(4)の各成分の含有量が約15～約55重量%であり、成分の合計が約100重量%である画像形成部材；(5)の各成分の含有量が約5～約95重量%であり、成分の合計が約100重量%である画像形成部材；(6)の各成分の含有量が約5～約95重量%であり、成分の合計が約100重量%である画像形成部材；(7)の各成分の含有量が約5～約95重量%であり、(全)成分の合計が約100重量%である画像形成部材；(8)の各成分の含有量が約5～約95重量%であり、成分の合計が約100重量%である画像形成部材；(9)の各成分の含有量が約5～約95重量%であり、成分の合計が約100重量%である画像形成部材；(10)の各成分の含有量が約5～約95重量%であり、成分の合計が約100重量%である画像形成部材；ペリレン混合物が、構造式1で示されるペリレン類を2種以上含む部材；ペリレン混合物が、構造式2で示されるペリレン類を2種以上含む部材；ペリレン混合物が、構造式3で示されるペリレン類を2種以上含む部材；混合物が、構造式1で示されるペリレンを1種以上と、構造式2で示されるペリレンを1種以上含む画像形成部材；ペリレン混合物が、構造式1で示されるペリレンを1種以上と、構造式3で示されるペリレンを1種以上含む画像形成部材；混合物が、構造式2で示されるペリレンを1種以上と、構造式3で示されるペリレンを1種以上含む画像形成部材；ペリレン混合物が、構造式1で示されるペリレン類を2種以上と、構造式2で示されるペリレンを1種以上含む画像形成部材；ペリレン混合物が、構造式1で示されるペリレン類を2種以上と、構造式3で示されるペリレンを1種以上含む画像形成部材；ペリレン混合物が、構造式1で示されるペリレン類を約1～約5種と、構造式2で示されるペリレン類を約1～約5種と、構造式3で示されるペリレン類を約1～約5種含む画像形成部材；アルキレンが2～約20の炭素原子を含み、アリーレンが6～約24の炭素原子を含む画像形成部材；Xが対称型部分であり、X-Yが非対称型架橋部分である画像形成部材；ペリレンのRが水素である部材；X-Yがアルキレンである部材；Xが(X)<sub>n</sub>で、nがセグメントの数を示すものである部材；nが0、1、又は2である部材；Xが(X)<sub>n</sub>で、nが0、1、又は2である部材；Xが炭素数1～約5である部材；この二つの二量体が2～約10種の混合物である部材；この二つの二量体が2～約5種の混合物である部材；支持層に接した接着層と正孔障壁層とを更に含む部材であ

る。

【0015】アルキルであるR基は、メチル、エチル、n-プロピル、イソプロピル、n-ブチル、イソブチル、n-ペンチル、2-メチルブチル、3-メチルブチル(別名：イソペンチル)、ネオペンチル、n-ヘキシル、4-メチルペンチル、n-ヘプチル、5-メチルヘキシル等である。オキサアルキルであるR基は、3-メトキシプロピル等であり、置換アルキルであるR基は、ニトロエチルのようなニトロ又はシアノアルキルなどであり、アリーレンであるR基は、フェニル、及び、クロロフェニル、メチルフェニル、シアノフェニル等の置換フェニル基などであり、アラルキルであるR基は、ベンジル、フェネチル、クロロベンジルなどの置換ベンジル、3-メチルフェネチルなどの置換フェネチルなどであり、アルキレンであるX基は、脂肪族、特に炭素数2～約25のアルキレンで、エチレン、1, 3-プロピレン、2-メチル-1, 3-プロピレン、及びそれ以上の炭素数のもの、またその分枝した対称型の異性体などであり、置換アルキレンは、2-メトキシ-1, 3-プロピレン等であり、シクロアルキレンであるX基は、cis-, trans-1, 3-シクロブチレン、cis-, trans-1, 3-シクロペンチレン、cis-, trans-1, 3-, 1, 4-シクロヘキシレンであり、アリーレンであるX基は、炭素数6～約24の、1, 3-, 1, 4-フェニレン、1, 4-, 1, 5-, 2, 6-, 2, 7-ナフチレン、1, 4-アントラセニレン、4, 4'-, 3, 3'-ビフェニレン、4, 4'-ジフェニルスルホン等の対称型芳香族であり、アラルキレンであるX基は、炭素数約8～約30の、1, 2-, 1, 3-, 1, 4-キシリレンなどの部分を含み、ペリレン部分はそのメチル置換基などの側鎖への連結又は結合により架橋している。非対称型X-Yアルキレンは、1, 2-プロピレン、1-メチル-1, 3-プロピレン、1-エチル-1, 3-プロピレン、1-メチル-1, 4-テトラメチレン、2-メチル-1, 4-テトラメチレン、1-メチル-1, 5-ペンタメチレン、2-メチル-1, 5-ペンタメチレン、及びそれ以上の炭素数約20までの非対称型アルキレン基などであり、非対称型X-Y置換アルキレンは、例えば、3-ヒドロキシ-1, 2-プロピレン、2-ヒドロキシ-1, 4-テトラメチレン、2-メトキシ-1, 4-テトラメチレン、2-カルボキシ-1, 4-テトラメチレン、2-ジメチルアミノ-1, 4-テトラメチレンなどであり、非対称型に置換された架橋基の例は、2, 4-, 2, 3'-, 2, 4'-, 3, 4'-ビフェニレン、1, 3-, 1, 6-, 1, 7-ナフチレンであり、非対称型X-Y置換アリーレンは、2-クロロ-1, 4-フェニレン、2-メチル-4, 4'-ビフェニレン、N-フェニルベンズアミド-3, 4'-ジイル、ジフェニルスルホン-3, 4'-ジイル、ジフェニルエーテル-3, 4'-ジ

イルなどの基であり、非対称型X-Yアラルキレンには、ベンジル、フェネチル、フェニルプロピル、フルオレニル基などが含まれ、一方のペリレンビスイミド部分がアルキル基に結合し、もう一方のペリレンビスイミド部分が芳香環、より詳しくはフェニルなどの2-, 3-, 又は4-位に結合している。非対称型X-Y置換アラルキレンでは、メチル、tert-ブチル、ハロゲン（フッ素、塩素、臭素、ヨウ素）、ヒドロキシ、メトキシ、ニトロ、シアノ、ジメチルアミノなどの置換基が芳香環に結合している。望ましい基は各々、Rが、水素、メチル、エチル、n-プロピル、n-ブチル、イソブチル、n-ペンチル、イソペンチル、2-メチルブチル、n-ヘキシル、4-メチルペンチル、n-ヘプチル、5-メチルヘキシル、n-オクチル、シクロペンチル、シクロヘキシル、ネオペンチル、3-メトキシプロピル、6-ヒドロキシヘキシル、フェニル、ベンジル、3-クロロベンジル、3-クロロ-4-フルオロベンジル、フェネチル、3-メチルフェネチルであり、Xが、エチレン、1, 3-プロピレン、2-メチル-1, 3-プロピレン、2, 2-ジメチル-1, 3-プロピレン、1, 4-テトラメチレン、1, 5-ペンタメチレン、1, 6-ヘキサメチレン、1, 7-ヘプタメチレン、1, 8-オクタメチレン、1, 4-フェニレン、4, 4'-ビフェニレン、1, 3-キシリレン、1, 5-ナフチレンであり、X-Yが、1-メチル-1, 3-プロピレン、1-メチル-1, 4-テトラメチレン、2-メチル-1, 5-ペンタメチレン、エチルベンゼン-β, 4-ジイル、ジフェニルエーテル-3, 4'-ジイル、フルオレニル-6, 9-ジイルである。

【0016】構造式1の、対称型ペリレン二量体顔料の特定例として、Rが、水素、メチル、エチル、n-プロピル、イソプロピル、シクロプロピル、シクロプロピルメチル、n-ブチル、イソブチル、sec-ブチル、シクロブチル、n-ペンチル、2-ペンチル（別名：1-メチルブチル）、3-ペンチル（別名：1-エチルプロピル）、2-(3-メチル)ブチル（別名：1, 2-ジメチルプロピル）、2-メチルブチル、3-メチルブチル（別名：イソペンチル）、ネオペンチル、シクロペンチル、n-ヘキシル、2-エチルヘキシル、シクロヘキシル、n-ヘプチル、シクロヘプチル、n-オクチル、シクロオクチル、n-ノニル、n-デシル、n-ウンデシル、n-ドデシル、フェニル、ベンジル、フェネチル、及び、芳香環に、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素、メチル、ヒドロキシメチル、トリフルオロメチル、tert-ブチル、tert-ブトキシ、メトキシ、トリフルオロメトキシ、ニトロ、シアノ、ジメチルアミノ、ジエチルアミノ等の置換基が1~5個含まれる、置換フェニル、ベンジル及びフェネチル基であり、X-Yが、例えば化9及び化10に示される非対称型架橋基であるものが挙げられる。

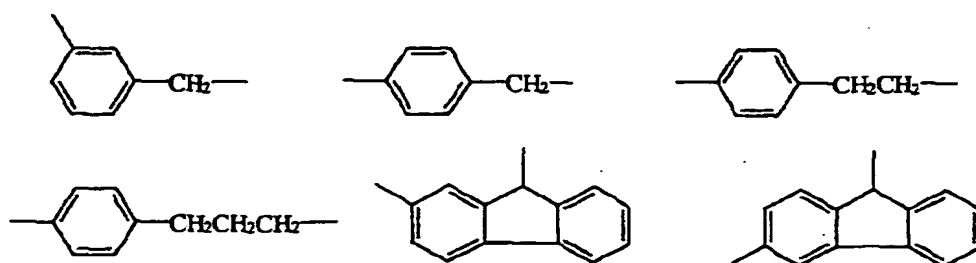
チル、ヒドロキシメチル、トリフルオロメチル、tert-ブチル、tert-ブトキシ、メトキシ、トリフルオロメトキシ、ニトロ、シアノ、ジメチルアミノ、ジエチルアミノ等の置換基が1~5個含まれる、置換フェニル、ベンジル及びフェネチルラジカル又は基であり、Xが、1, 3-プロピレンで代表されるアルキレンであるものが挙げられる。例えば、Rがn-プロピル、Xが1, 3-プロピレン、; Rがn-プロピル、Xが4, 4'-ビフェニル、; Rがフェネチル、Xが1, 3-プロピレン、; Rがn-ペンチル、Xが1, 3-プロピレン、; Rがn-ブチル、Xが1, 3-プロピレン、; Rがイソブチル、Xが1, 3-プロピレン、; Rが2-メチルブチル、Xが1, 3-プロピレン、; Rがイソペンチル、Xが1, 3-プロピレン、; Rがn-ヘキシル、Xが1, 3-プロピレン、; Rがn-ブチル、Xが4, 4'-(4', 4'-ジフェノキシ)フェニレン、; Rがn-プロピル、XがN-N結合、等である。

【0017】本件に述べる構造式2で示される、非対称型架橋を持つ非対称型ペリレン二量体顔料の例としては、Rが、水素、メチル、エチル、n-プロピル、イソプロピル、3-メトキシプロピル、3-ヒドロキシプロピル、シクロプロピル、シクロプロピルメチル、n-ブチル、イソブチル、sec-ブチル、シクロブチル、n-ペンチル、2-ペンチル（別名：1-メチルブチル）、3-ペンチル（別名：1-エチルプロピル）、2-(3-メチル)ブチル（別名：1, 2-ジメチルプロピル）、2-メチルブチル、3-メチルブチル（別名：イソペンチル）、ネオペンチル、シクロペンチル、n-ヘキシル、2-エチルヘキシル、シクロヘキシル、n-ヘプチル、シクロヘプチル、n-オクチル、シクロオクチル、n-ノニル、n-デシル、n-ウンデシル、n-ドデシル、シクロドデシル、フェニル、ベンジル、フェネチル、及び、芳香環に、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素、メチル、ヒドロキシメチル、トリフルオロメチル、tert-ブチル、tert-ブトキシ、メトキシ、トリフルオロメトキシ、ニトロ、シアノ、ジメチルアミノ、ジエチルアミノ等の置換基が1~5個含まれる、置換フェニル、ベンジル及びフェネチル基であり、X-Yが、例えば化9及び化10に示される非対称型架橋基であるものが挙げられる。

#### 【0018】非対称型X-Y架橋基の例

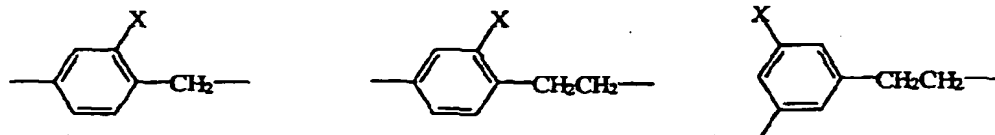
X-Y：アラルキレン

【化9】



X-Y: 置換アラルキレン

【化 10】



X: F, Cl, Br, OH, CH<sub>3</sub>, OCH<sub>3</sub>, (C  
H<sub>3</sub>)<sub>2</sub>N, CN, NO<sub>2</sub> 等

【0019】構造式2で示される光発生非対称型ペリレン二量体の特定例は、Rが、水素、メチル、エチル、n-プロピル、アリル、3-メトキシプロピル、n-ブチル、イソブチル、n-ペンチル、2-メチルブチル、3-メチルブチル（別名：イソペンチル）、ネオペンチル、n-ヘキシル、n-ヘプチル、n-オクチル、フェニル、ベンジル、3-クロロベンジル、フェネチルであり、X-Yが、プロパン-1, 2-ジイル、ブタン-1, 2-ジイル、ブタン-1, 3-ジイル、2-メチルブタン-1, 4-ジイル、ペンタン-1, 3-ジイル、ペンタン-1, 4-ジイル、2-メチルペンタン-1, 5-ジイル、トルエン- $\alpha$ , 4-ジイル、エチルベンゼン- $\beta$ , 4-ジイル、ジフェニルエーテル-3, 4'-ジイルであるものなどである。

【0020】構造式3の、異なる末端置換基を持つ非対称型ペリレン二量体顔料の例としては、Rが、水素、メチル、エチル、*n*-プロピル、イソプロピル、シクロプロピル、シクロプロピルメチル、*n*-ブチル、イソブチル、*sec*-ブチル、シクロブチル、*n*-ペンチル、2-ペンチル（別名：1-メチルブチル）、3-ペンチル（別名：1-エチルプロピル）、2-（3-メチル）ブチル（別名：1, 2-ジメチルプロピル）、2-メチルブチル、3-メチルブチル（別名：イソペンチル）、ネオペンチル、シクロペンチル、*n*-ヘキシル、2-エチルヘキシル、シクロヘキシル、*n*-ヘプチル、シクロヘプチル、*n*-オクチル、シクロオクチル、*n*-ノニル、*n*-デシル、*n*-ウンデシル、*n*-ドデシル、フェニル、ベンジル、フェネチル、及び、芳香環に、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素、メチル、ヒドロキシメチル、トリフルオロメチル、*tert*-ブチル、*tert*-ブトキシ、メトキシ、トリフルオロメトキシ、ニトロ、シアノ、ジメチルアミノ、ジエチルアミノ等の置換基が1～5個含まれる、置換フェニル、ベンジル及びフェネチルラジカルであり、Xが、1, 3-プロピレンで代表されるアルキレンであるものが挙げられる。

【0021】構造式3で示される、異なる末端置換基を持つ非対称型ペリレン二量体の特定例は、R<sub>1</sub>がn-プロピル、R<sub>2</sub>がイソプロピル、Xが1, 3-プロピレン、; R<sub>1</sub>がn-ブチル、R<sub>2</sub>がイソブチル、Xが1, 3-プロピレン、; R<sub>1</sub>がフェネチル、R<sub>2</sub>がフェニル、Xが1, 3-プロピレン、; R<sub>1</sub>がn-ペンチル、R<sub>2</sub>が2-メチルブチル、Xが1, 3-プロピレン、; R<sub>1</sub>がn-ブチル、R<sub>2</sub>がn-ヘキシル、Xが1, 3-プロピレン、; R<sub>1</sub>がn-プロピル、R<sub>2</sub>がイソプロピル、Xが4, 4'-ビフェニル、; R<sub>1</sub>がn-ペンチル、R<sub>2</sub>が2-メチルブチル、Xが4, 4'-ビフェニル、; R<sub>1</sub>がn-ブチル、R<sub>2</sub>がイソブチル、Xが4, 4'-ビフェニル、; R<sub>1</sub>がn-プロピル、R<sub>2</sub>がイソプロピル、XがN-N結合、であるものである。

【0022】特定の混合物の例は、次のとおりである。

【0023】混合物1：1，3-ビス（*n*-ペンチルイミドペリレンイミド）プロパンと、その異性体である1，3-ビス（2-メチルブチルイミドペリレンイミド）プロパンからなる2種のペリレン二量体、

混合物 2 : 1, 3-ビス (n-ペンチルイミドペリレンイミド) プロパンと、その異性体である 1- (n-ペンチルイミドペリレンイミド) -3- (2-メチルブチルイミドペリレンイミド) プロパンからなる 2 種のペリレン二量体。

混合物 3 : 1, 3-ビス (2-メチルブチルイミドペリレンイミド) プロパンと、1-(n-ペンチルイミドペリレンイミド)-3-(2-メチルブチルイミドペリレンイミド) プロパンからなる 2 種のペリレン二量体、

混合物4：1，3-ビス（*n*-ペンチルイミドペリレンイミド）プロパンと、その異性体である1，3-ビス（2-メチルブチルイミドペリレンイミド）プロパンと、1-（*n*-ペンチルイミドペリレンイミド）-3-（2-メチルブチルイミドペリレンイミド）プロパンからなる3種のペリレン二量体。

混合物5：1，3-ビス（*n*-プロピルイミドペリレンイミド）プロパンと、1，3-ビス（*n*-ブチルイミドペリレンイミド）プロパンと、1，3-ビス（*n*-ペン

チルイミドペリレンイミド) プロパンからなる3種のペリレン二量体、

混合物6: 1, 5-ビス(n-ブチルイミドペリレンイミド)-2-メチルペンタンと、1, 5-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)-2-メチルペンタンからなる2種のペリレン二量体、

混合物7: 1, 3-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド) プロパンと、1, 5-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)-2-メチルペンタンからなる2種のペリレン二量体、

混合物8: 1, 3-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド) プロパンと、その異性体である1, 3-ビス(2-メチルブチルイミドペリレンイミド) プロパンと、1, 3-ビス(n-ブチルイミドペリレンイミド) プロパンと、その異性体である1, 3-ビス(イソブチルイミドペリレンイミド) プロパンからなる4種のペリレン二量体、

混合物9: 1, 3-ビス(n-プロピルイミドペリレンイミド) プロパンと、1, 3-ビス(n-ブチルイミドペリレンイミド) プロパンと、1, 3-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド) プロパンと、1, 3-ビス(n-ヘキシルイミドペリレンイミド) プロパンからなる4種のペリレン二量体、

及び、他の様々な適当な混合物である。

【0024】混合物中の各ペリレン成分の量は、例えば、約5重量%以上であり、混合物中の全ての成分の合計は約100重量%である。2種の二量体混合物の場合、各成分の含有量は約5~約95重量%、望ましくは約25~約75重量%である。3種の二量体混合物の場合、各成分の含有量は約5~約90重量%、望ましくは約25~約50重量%である。4種の二量体混合物の場合、各成分の含有量は約5~約85重量%、望ましくは約15~約55重量%である。厳密な混合組成は、例えば電子写真法における電気的特性、顔料分散特性、光学的吸収特性などの所望の物理的特性によって決まる。

【0025】また混合物の組成は、含有するペリレン成分の数、所望の感光度や分光感度範囲によって変わるが、各成分を約5重量%以上含むことが望ましい。このため、2種の異なるペリレンの混合物の場合、各二量体成分の割合は、混合物中の2成分の合計を約100重量%として、約5~約95重量%の範囲で変えることができる。3種の異なる二量体の混合物では、各成分の量は、約5~約90重量%の範囲で変えることができる。1, 3-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド) プロパンと、その異性体である1, 3-ビス(2-メチルブチルイミドペリレンイミド) プロパンとを含む特定の混合物では、各成分の含有量は約5~約95重量%、望ましくは約50重量%である。3種の二量体を含む、別の特定の二量体混合物、1, 3-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド) プロパンと、1, 3-ビス(2-

メチルブチルイミドペリレンイミド) プロパンと、1-(n-ペンチルイミドペリレンイミド)-3-(2-メチルブチルイミドペリレンイミド) プロパンとの混合物では、各成分の含有量は約5~約90重量%、望ましくは約25~約50重量%である。ペリレン混合物は、本件に述べる構造式1、2、及び3で示される化合物を2成分以上含むものであり、構造式1の2種の化合物の混合物、構造式1と3の2種の化合物の混合物、構造式2の異なる2種の化合物の混合物、構造式1、1及び3の異なる3種の化合物の混合物、また構造式1、2、又は3; 1、2、及び3; 1及び2; 1及び3; 2及び3などで示される、様々な化合物の異なる混合物、及びそれらの混合物など、構造式1、2、又は3で示される化合物の混合物である。

【0026】支持層(substrate)は、全体が導電性材料でできているものでも、あるいは導電性表面を備えた絶縁性材料から成るものでも良い。支持層は効果的な厚さ、通常約100ミル(約2540 $\mu$ m)以下、望ましくは約1~約50ミル(約25.4~約1270 $\mu$ m)であるが、この範囲を越えても良い。支持層の厚さは、経済的配慮や機械的要求などの多くの要因によって決まるため、相当な厚さ、例えば100ミル(2540 $\mu$ m)以上、あるいは悪影響が無い限り最小の厚さとすることができる。特に望ましい実施の形態では、この層の厚さは約3~約10ミル(約76.2~約254 $\mu$ m)である。支持層は不透明でもほぼ透明でも良く、所望の機械的特性を備えた様々な適当な素材を含むことができる。支持層全体が導電性表面と同じ素材であっても、あるいは支持層上に導電性表面を被覆しただけのものでも良い。様々な適当な導電性材料が使用できる。典型的な導電性材料としては、銅、真鍮、ニッケル、亜鉛、クロム、ステンレススチール、伝導性プラスチック及びゴム類、アルミニウム、半透過性アルミニウム、鋼鉄、カドミウム、チタン、銀、金、また紙に適当な材料を含ませ、あるいは、インジウム、スズ、酸化スズや酸化インジウムスズなどの金属酸化物、等の伝導性材料を溶かすよう、十分な水分含量とした湿潤雰囲気中で紙を処理して伝導性を持たせたものなどが挙げられる。支持層の厚さは、光導電性部材の所望の使用法によって、相当広範囲に変えることができる。一般に伝導層の厚さは、約50オングストロームから数cmであるが、この範囲を越えても良い。可撓性電子写真画像形成部材とする場合、その厚さは通常約100~約750オングストロームである。支持層には、有機や無機材料などの他の従来の素材も使用できる。代表的な支持層材料は、ポリカーボネート類、ポリアミド類、ポリウレタン類、紙、ガラス、プラスチック、マイラ(MYLAR) (登録商標) (E. I. デュポン(E. I. DuPont)製)やメリネクス447(MELINEX 447) (登録商標) (ICIアメリカズ社(ICI Americas, Inc.)製)などの

ポリエステル類等の、この目的に適う様々な樹脂など、絶縁性で非伝導性の材料である。所望ならば、絶縁性材料の上に導電性支持層を被覆することもできる。更に、支持層は、チタン又はアルミニウムで処理したマイラ（登録商標）、ポリエチレンテレフタレートなどの金属化プラスチックを含むものでも良く、この金属化された表面は光発生層と、あるいは支持層と光発生層との間に設けられた他の層と接している。被覆された、又は被覆されていない支持層は、可撓性又は堅牢であり、板状、円筒形ドラム、巻物状、エンドレスの可撓性ベルトなど様々な形状とすることができる。支持層の外側表面は、望ましくは酸化アルミニウム、酸化ニッケル、酸化チタン等の金属酸化物を含むものである。

【0027】実施の形態において、接着性を高め剥離を防ぐため、望ましくは支持層と次に塗布する層との間に、中間接着層を設けることが望ましい。接着層を用いる場合、その乾燥厚さは、望ましくは約0.1～約5 $\mu$ mであるが、この範囲を越えるものでも良い。典型的な接着層は、ポリエステル、ポリビニルブチラル、ポリビニルピロリドン、ポリカーボネート、ポリウレタン、ポリメタクリル酸メチル等、及びそれらの混合物などの、塗膜形成ポリマーである。支持層の表面は金属酸化物層又は接着層とすることができるため、支持層という表現には、金属酸化物層と、その上に接着層がある場合には接着層も含むものとする。

【0028】光発生層は効果的な厚さ、例えば、約0.05～約10 $\mu$ m又はそれ以上であり、実施の形態では、約0.1～約3 $\mu$ mである。この層の厚さは、主に層中の光発生材料の濃度によって決まり、その濃度は通常約5～100%である。光発生層を顔料の真空蒸着により調製すると、通常、100%という値となる。光発生材料がバインダ材料中にある場合、例えば約25～約95重量%、望ましくは約60～約80重量%の光発生材料がバインダ中に含まれる。通常、この層は、画像形成又は印刷露光工程において、その上に照射される光の約90～約95%又はそれ以上を吸収するのに十分な厚さとすることが望ましい。この層の厚さの上限は、主に機械的要求、また使用する光発生化合物、他の層の厚さ、可撓性の光導電性画像形成部材である必要があるかなどなどの要因によって決まる。

【0029】典型的な輸送層については、例えば、米国特許第4,265,990号、米国特許第4,609,605号、米国特許第4,297,424号、米国特許第4,921,773号に述べられている。

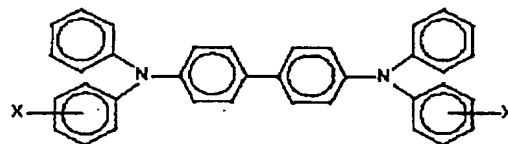
【0030】典型的なジアミン正孔輸送分子は、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(3-メチルフェニル)-(1,1'-ビスフェノール)-4,4'-ジアミン(別名:N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(3-メチルフェニル)ベンジジン。なお、以下「(1,1'-ビスフェノール)-4,4'-ジアミン」

を「ベンジジン」という。)、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(4-メチルフェニル)ベンジジン、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(2-メチルフェニル)ベンジジン、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(3-エチルフェニル)ベンジジン、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(4-エチルフェニル)ベンジジン、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(4-n-ブチルフェニル)ベンジジン、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(3-クロロフェニル)ベンジジン、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(4-クロロフェニル)ベンジジン、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(3-メチルフェニル)-ピレニル-1,6-ジアミン(別名:N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(3-メチルフェニル)-1,6-ジアミノピレン)等である。

【0031】望ましい正孔輸送層は、次の一般式、化11で示される、あるいは本質的に示されるアリールジアミン成分を、望ましくは絶縁性が高く透明なポリマーバインダ中に分散したものである。この成分は、例えば優れた電荷輸送効果を可能とするものである。

【0032】

【化11】



このとき、Xはアルキル基、ハロゲン又はそれらの混合物であり、特にこれらの置換基はC1とCH3とから成るグループより選ばれる。更に詳しく述べるならば、環がX、Y、Zを含み、YとZがXのように外側の環の一つに位置している場合、これらは、水素、例えば炭素数1～約25のアルキル基、望ましくは塩素であるハロゲンから成るグループより選ばれ、X、Y、Zの一つ以上は単独にアルキル基又は塩素である。YとZが水素である場合、この化合物はN,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(アルキルフェニル)ベンジジンであり、このときアルキルは、例えば、メチル、エチル、プロピル、n-ブチル等である。あるいはこの化合物は、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(クロロフェニル)ベンジジンである。

【0033】アリールアミン類の特定例は、アルキルが、メチル、エチル、プロピル、ブチル、ヘキシル等から成るグループより選ばれる、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(アルキルフェニル)ベンジジン；ハロゲン置換基が望ましくは塩素である、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(ハロゲン化フェニル)ベンジジンである。他の公知の電荷輸送層分子も使用でき、これについては、例えば、米国特許第4,921,773号、米国特許第4,464,450号を参照されたい。

【0034】電荷輸送材料は電荷輸送層中に、効果的な

量、通常約5～約90重量%、望ましくは約20～約75重量%、より望ましくは約30～約60重量%含まれるが、この範囲を越えても良い。

【0035】輸送層に用いられる樹脂性成分又は不活性バインダ樹脂性材料の例は、米国特許第3,121,006号に述べられているものなどである。適当な有機樹脂性材料の特定例としては、ポリカーボネート類、アクリル酸ポリマー類、ビニルポリマー類、セルロースポリマー類、ポリエステル類、ポリシロキサン類、ポリアミド類、ポリウレタン類、ポリスチレン類、エポキシ樹脂、及びそれらのブロック、ランダム又は交互共重合体などが挙げられる。望ましい電氣的に不活性なバインダ材料は、分子量約2万～約10万のポリカーボネート樹脂であり、特に分子量範囲が約5万～約10万のものが望ましい。通常、樹脂性バインダには、前述の構造式に相当する活性材料が約5～約90重量%、望ましくは約20～約75重量%含まれる。

【0036】光発生層にも、ポリエステル類、ポリビニルブチラール類、ポリビニルカルバゾール、ポリカーボネート類、ポリビニルホルマール類、ポリビニルアセタール類、及び米国特許第3,121,006号に記載のものなど、同様なバインダ材料が用いられる。

【0037】光導電性画像形成部材には、必要に応じて、伝導性支持層と光発生層との間に電荷障壁層を設けることができる。この層は、酸化アルミニウムなどの金属化合物や、シラン類、ナイロンなどの材料を含むものである。適した材料の更なる例としては、ポリメタクリル酸イソブチル、スチレン/メタクリル酸n-ブチルなどの、スチレンと(メタ)アクリル酸エステルとの共重合体、スチレンとビニルトルエンとの共重合体、ポリカーボネート類、アルキル置換ポリスチレン類、スチレン-オレフィン共重合体、ポリエステル類、ポリウレタン類、ポリテルペン類、シリコーンエラストマー類、それらの混合物、それらの共重合体、等が挙げられる。この層の主な目的は、荷電中及び荷電後の、支持層からの電荷の流入を防ぐことである。この層の厚さは、望ましくは約50オングストローム程度又はそれ以下から約10 $\mu$ mであり、最も望ましくは約2 $\mu$ m以下である。必要に応じて、この光導電性画像形成部材に、先に述べたような接着中間層を、望ましくは正孔障壁層と光発生層との間に設ける。この層は、ポリエステル、ポリビニルブチラール、ポリビニルピロリドン等のポリマー材料を含むものであり、通常、この層の厚さは、0.6 $\mu$ m以下、約0.1～約0.5 $\mu$ mが最も望ましい。

【0038】本件の実施の形態に述べた対称型及び非対称型ペリレン二量体化合物の混合物は、可視波長領域の感光性を高めることができる。特に本発明の実施の形態では、約400～約800nmの波長に感光性を持つ画像形成部材を提供し、この部材は特に、カラーコピー及び画像形成、また典型的に約600～約800nmに感

度が必要な、赤色LED及びダイオードレーザー印刷処理などの印刷法に有用である。

【0039】本発明はまた、本件に開示の光導電性画像形成部材を用いた画像形成法を含むものである。この方法は、本発明の光導電性画像形成部材上に静電潜像を形成する工程と、樹脂と、カーボンブラックなどの顔料と、電荷添加剤とを含む公知のトナーを用いて潜像を現像する工程と、現像された静電画像を被印刷体に転写する工程とを含むものである。必要に応じて、転写された画像は被印刷体に恒久的に定着される。画像の現像は、カスケード、タッチダウン、パウダクラウド(powder cloud)、磁性ブラシなど種々の方法で行う。現像された画像の被印刷体への転写は、コロトロンやバイアスをかけたロールを用いる方法など、どのような方法で行っても良い。定着は、フラッシュ定着、熱定着、圧力定着、蒸気定着などの適当な方法で行う。被印刷体としては、紙や透明画素材など、電子写真式複写機及びプリンタで用いられるどのような材料も使用できる。

【0040】

【実施例】実施例1.

#### 合成例

以下の実施例における始発物質であるモノイミド無水物は、米国特許第4,501,906号に記述の方法で、又はそれを一部変更して調製した。生成二量体の構造は、主に、トリフルオロ酢酸含有溶媒混合物中における、 $^1\text{H}$ 及び $^{13}\text{C}$ 核磁気共鳴スペクトル法により確定した。各生成物の、トリフルオロ酢酸-ジクロロメタン溶液中での可視吸収スペクトルも測定した。ビスイミド二量体は、約500nmと約540nmに吸収極大を示す。ペリレンビスイミド部分をイミドペリレンイミド基とし、これに置換基を付けた慣用名を用いた。混乱や不明確を避けるため、全ての化合物を構造式1、2、及び3で示す。

【0041】実施例2.

#### 合成例1

1, 3-ビス(n-ペンチルイミドペリレンイミド)プロパン(構造式1、R:n-ペンチル、X:1, 3-プロピレン)の調製

1リットルの三角フラスコ中の、750mlのN-メチルピロリドン(NMP)に、12.7g(0.0275mol)のn-ペンチルイミドペリレン無水物を良く攪拌して分散させたものに、0.927g(1.05ml、0.0125mol)の1, 3-ジアミノプロパンを加えて反応させた。この混合物を室温、約25℃で15分間攪拌し、次に加熱還流した。この混合物は、最初、約120℃において濃い暗茶色となったが、202℃で還流を始めると薄くなり、色が黒色に変わった。この混合物を攪拌しながら3時間15分還流した後、160℃まで冷やした。約300mlの沸騰ジメチルホルムアミ

ド (DMF) (沸点154℃) で予め暖めておいた、磁製漏斗中の15cmのワットマングラスファイバーフィルタ (Whatman Glass Fiber Filter) (GF/Fグレード) で、得られた混合物をろ過した。得られた固体生成物を、漏斗上で150mlの沸騰DMFで3回洗った。最初のろ液は暗茶色であり、最後の沸騰DMFでの洗浄によるろ液は無色であった。得られた固形物を50mlのDMFで洗い、次に25mlの水で3回洗った。固形物を60℃で乾燥したところ、11.1g (収率93%) の二量体が黒色固体として得られた。水酸化カリウムの稀薄溶液を用いたはん点試験では、始発物質の無水物は認められなかった。得られた二量体は、1, 3-ビス (n-ペンチルイミドペリレンイミド) プロパン (構造式1、R: n-ペンチル、X: 1, 3-プロピレン) であると同定された。これを535-二量体 (5はn-ペンチルを示し、3は1, 3-プロピレンを示す) とする。

#### 【0042】実施例3.

##### 合成例2

1, 3-ビス (2-メチルブチルイミドペリレンイミド) プロパン (構造式1、R: 2-メチルブチル、X: 1, 3-プロピレン) の調製

用いたモノイミド-無水物が2-メチルブチルイミドペリレン-無水物であること以外は、合成例1と同じ方法で、1, 3-ビス (2-メチルブチルイミドペリレンイミド) プロパン (構造式1、R: 2-メチルブチル、X: 1, 3-プロピレン) の合成を行った。得られた二量体は標記のものであり、これを5'35'-二量体 (5'は2-メチルブチルを示す) とする。

#### 【0043】実施例4.

##### 合成例3

1- (n-ペンチルイミドペリレンイミド) -3- (2-メチルブチルイミドペリレンイミド) プロパン (構造式3、R<sub>1</sub>: n-ペンチル、R<sub>2</sub>: 2-メチルブチル、X: 1, 3-プロピレン) の調製

(A) アミノアルキルビスイミド中間体、N- (n-ペンチル) -N'- (3-アミノプロピル) ペリレンビスイミドの合成

600mlのトルエンに、18.44g (0.04モル) のn-ペンチルイミドペリレン-無水物を懸濁させたものに、29.6g (33.4ml、0.4モル) の1, 3-ジアミノプロパンを加えた。この懸濁液を加熱攪拌し、約110℃で3時間還流した。反応混合物を約25℃まで放冷後、ろ過した。得られた固形物を、ろ過漏斗中、100mlのトルエンで洗い、次に50mlのメタノールで3回洗い、60℃で乾燥したところ20.3gの暗茶色の固体が得られた。茶色の粗製固形物を、次に400mlの氷酢酸中で攪拌し、得られた混合物を加熱攪拌して還流した。予め暖めておいたグラスファイバーフィルタで懸濁液を熱いまろ過し、得られた固形

物を、100mlの沸騰氷酢酸で2回、次に20mlのメタノールで3回洗った。ろ液を集め、室温まで放冷した。攪拌しながら、このろ液に500mlのイソプロパノールを加え、固体状化合物を沈殿させた。この固体をイソプロパノールで洗い、60℃で乾燥したところ、18.5g (収率80%) のN- (n-ペンチル) -N'- (3-アミノプロピル) ペリレンビスイミドの酢酸塩が得られた。

【0044】(B) 上記のアミノアルキルビスイミドと2-メチルブチルペリレンモノイミドとの縮合  
上記のアミノアルキルイミド酢酸塩 (2.60g、0.0045モル) と、2-メチルブチルイミドペリレン-無水物 (2.31g、0.0050モル) とを300mlのNMP中で加熱攪拌して、約202℃で1時間還流した。得られた黒色の懸濁液を150℃まで冷やし、沸騰DMFで予め暖めておいたグラスファイバーフィルタでろ過した。固形物を50mlの沸騰DMFで3回、次に20mlのメタノールで3回洗った。反応がほぼ完了した湿った塊を125mlの2%水酸化カリウム水溶液中に分散して室温で20時間攪拌し、少量の未反応2-メチルブチルイミドペリレン-無水物を除去した。次にこの分散液をろ過し、固体を100mlの水で2回、次に沸騰した湯で、ろ液が無色になるまで洗った。得られた固体を次に25mlのメタノールで2回洗い、60℃で乾燥したところ3.7g (収率86%) の黒色固体が得られた。プロトン磁気共鳴スペクトル法によれば、この物質は純度99%以上の標記の非対称型二量体生成物であり、他の不純物は検出されなかった。簡単にするため、この生成物 (構造式3、R<sub>1</sub>: n-ペンチル、R<sub>2</sub>: 2-メチルブチル、X: 1, 3-プロピレン) を、535'-二量体とする。

#### 【0045】実施例5.

##### 合成例4

1, 3-ビス (n-ブチルイミドペリレンイミド) プロパン (構造式1、R: n-ブチル、X: 1, 3-プロピレン) の調製

用いたモノイミド-無水物がn-ブチルイミドペリレン-無水物であること以外は、合成例1と同じ方法で、1, 3-ビス (n-ブチルイミドペリレンイミド) プロパン (構造式1、R: n-ブチル、X: 1, 3-プロピレン) の合成を行った。上記の生成物を434-二量体 (4はn-ブチル、3は1, 3-プロピレンを示す) とする。

#### 【0046】実施例6.

##### 合成例5

1, 3-ビス (n-ヘキシルイミドペリレンイミド) プロパン (構造式1、R: n-ヘキシル、X: 1, 3-プロピレン) (636-二量体) の調製

用いたモノイミド-無水物がn-ヘキシルイミドペリレン-無水物であること以外は、合成例1と同じ方法で、



1, 3-ビス (n-ヘキシルイミドペリレンイミド) プロパン (構造式1、R: n-ヘキシル、X: 1, 3-プロピレン) の合成を行った。

【0047】実施例7.

#### 合成例6

1, 5-ビス (n-ブチルイミドペリレンイミド) -2-メチルペンタン (構造式2、R: n-ブチル、X-Y: 2-メチル-1, 5-ペンタメチレン) の調製

100mlのNMPに、2.46g (0.0055モル) のn-ブチルイミドペリレン-無水物を分散させたものに、0.2905g (0.338ml、0.00250モル) の1, 5-ジアミノ-2-メチルペンタン (ダイテック A (Dytek A)) を加えて反応させた。この混合物を加熱攪拌し、202℃で2.5時間還流した。得られた濃い暗茶色の反応混合物を、150℃まで冷やし、次に、100mlの沸騰ジメチルホルムアミド (DMF) 溶媒 (沸点154℃) を通して予め暖めておいた9cmのグラスファイバーフィルタ (ワットマン 934AHグレード) でろ過した。得られた固体生成物を、漏斗上で75mlの沸騰DMFで3回洗った。最後の洗浄ろ液は僅かにピンク色であった。この固形物を25mlの冷DMFで洗い、次に25mlのメタノールで2回洗い、60℃で乾燥したところ、2.25g (収率92%) の暗い焦茶色の固体として、標記の化合物 (構造式2、R: n-ブチル、X-Y: 2-メチル-1, 5-ペンタメチレン) が得られた。この二量体の純度は99%以上であった。

【0048】約50mgの顔料を、2mlの2%水酸化カリウム水溶液中、室温で4時間攪拌し、始発物質の一

無水物の存在を確認するはん点試験を行ったが、モノイミドジカルボン酸塩を示す深い赤紫色は認められず、陰性であった。

【0049】実施例8.

#### 合成例7

1, 5-ビス (n-ペンチルイミドペリレンイミド) -2-メチルペンタン (構造式2、R: n-ペンチル、X-Y: 2-メチル-1, 5-ペンタメチレン) の調製

100mlのNMP中で、2.54g (0.0055モル) のn-ペンチルイミドペリレン-無水物と、0.2905g (0.338ml、0.00250モル) のダイテック Aジアミンとの混合物を加熱攪拌し、202℃で2時間45分還流した後、150℃まで冷やした。これを熱いまる過し、得られた固形物を、上記の合成例6と同様に、沸騰DMFと、冷DMFと、メタノールとで洗い、60℃で16時間乾燥したところ、2.20g (収率88%) の赤茶色の固体として、標記生成物、1, 5-ビス (n-ペンチルイミドペリレンイミド) -2-メチルペンタンが得られた。始発物質の一無水物の存在を確認するはん点試験は陰性であった。

【0050】実施例9.

#### 装置試験1

ペリレンビスイミド二量体とその混合物の電子写真における性能評価

合成例1、2、3で得られたペリレン二量体顔料を用いて、6検体の感光性画像形成部材を製造した。表1に、光発生層の形成に用いた顔料の組成を示す。

【0051】

【表1】

画像形成部材	光発生層中における顔料の組成 (重量%)
A	合成例1の535-二量体顔料が100%
B	合成例2の5'35'-二量体顔料が100%
C	合成例3の535'-二量体顔料が100%
D	535-二量体が50%と、5'35'-二量体が50%
E	535-二量体が50%と、535'-二量体が50%
F	535-二量体が25%と、5'35'-二量体が25%と、535'-二量体が50%

この感光性画像形成部材は、光発生層と、その上に重ねた電荷輸送層を含む、二層型感光体として一般的に知られているものである。光発生層は次のようにして顔料分散液から調製した。8分の1インチのステンレススチール球70gを入れた30mlのガラス瓶中で、表1に示す組成の、0.2gのペリレン二量体顔料又は混合物と、0.05gのポリビニルブチラール (PVB) ポリマーと、3.5gのテトラヒドロフラン (THF) と、3.5gのトルエンとを混合した。瓶をローラーミルにセットし、分散液を4日間摩砕した。厚さ0.1μmのシラン層と、その上に厚さ0.1μmのポリエステル接

着層 (E. I. デュポン製、49,000) とを備えた、厚さ75μmのチタン処理マイラ (登録商標) 支持層の上に、間隙幅1.5ミル (38.1μm) のフィルムアプリータを用いて顔料分散液を塗布し、次に空气中で約10分間乾燥させて光発生層を形成した。この光発生層に、次のようにしてアミン含有電荷輸送層を各々上塗りして、各装置とした。6.3gのマクロロン (MAKROLON) (登録商標) ポリカーボネート樹脂と、6.3gのN, N'-ジフェニル-N, N'-ビス (3-メチルフェニル) ベンジジンと、72gのジクロロメタンとを混合して輸送層塗布用溶液を調製した。間

隙幅10ミル(254 $\mu$ m)のフィルムアプリータを用いて、この溶液を上記の光発生層上に塗布した。得られた部材を、115℃の強制換気オープン中で60分間乾燥した。輸送層の最終的な乾燥厚さは約25 $\mu$ mであった。

【0052】電位計に繋いだ容量結合プローブで測定を行いながら、部材の表面電位が初期値 $V_0$ に達するまで、コロナ放電装置を用いて静電的に荷電して、各画像形成部材の電子写真における電氣的特性を調べた。暗所に0.5秒置いた後の、荷電部材の表面電位を $V_{ddp}$ (暗現像電位)とし、次にフィルタを通したキセノンランプの光で露光した。光放電効果による、表面電位の $V_{bg}$ (バックグラウンド電位)への低下が見られた。通常、暗失活( $V$ /秒)は、 $(V_0 - V_{ddp}) / 0.5$ で求められる。一般に暗失活値が小さいと、部材の露光前

の電荷保持能が良好である。また、 $V_{ddp}$ が小さいと、部材の荷電性能は悪い。光放電率は、 $100\% \times (V_{ddp} - V_{bg}) / V_{ddp}$ で求められる。露光過程の間、画像形成部材の光放電に用いた光エネルギーは、照度計で測定した。画像形成部材の感光度は、暗現像電位の50%まで光放電させるのに必要な露光エネルギー(エルグ/平方cm)の量、 $E_{1/2}$ で表すことができる。感光度が高いと、 $E_{1/2}$ 値は小さくなる。より性能の優れた電子写真用画像形成部材としては、高い感光度(低い $E_{1/2}$ 値)、低い暗失活、高い荷電性能が要求される。

【0053】次の表2に、波長620nmで露光した場合の、電子写真における電氣的特性の測定結果をまとめた。

【0054】

【表2】

画像形成部材	光発生層中における顔料の組成(重量%)	暗失活(V/秒)	$E_{1/2}$ (エルグ/平方cm)
A	合成例1の535-二量体顔料が100%	6.9	4.37
B	合成例2の5'35'-二量体顔料が100%	10.4	6.98
C	合成例3の535'-二量体顔料が100%	21.2	4.62
D	535-二量体が50%と、5'35'-二量体が50%	10.4	3.58
E	535-二量体が50%と、535'-二量体が50%	8.9	4.0
F	535-二量体が25%と、5'35'-二量体が25%と、535'-二量体が50%	16.2	3.6

二量体光発生顔料を1種しか含まない画像形成部材(A、B、C)は、二量体混合物を含む部材(D、E、F)より低い感光度(又は高い $E_{1/2}$ 値)であった。例えば、5'35'-二量体(部材B)の感光度は、光発生層の製造時に、535-二量体のみを加える(部材D)、又は535-二量体と535'-二量体の混合物を加える(部材F)と、40%以上も向上した。最も感度の低い5'35'-二量体(部材B)を、最も感度の高い535-二量体(部材A)に加えても、部材Dに示されるように感光度を20%程度向上させる(すなわ

ち、 $E_{1/2}$ 値を下げる)ことができる。

【0055】実施例10.

#### 装置試験2

#### ペリレンビスイミド二量体とその混合物の電子写真における性能評価

光発生層の組成を、表3に示すものに変える以外は、装置試験1の方法と同様にして、3検体の感光性画像形成部材を製造した。

【0056】

【表3】

画像形成部材	光発生層における顔料の組成(重量%)	暗失活(V/秒)	$E_{1/2}$ (エルグ/平方cm)
G	合成例4の434-二量体顔料が100%	9.8	5.31
H	合成例5の636-二量体顔料が100%	19.4	5.04
I	434-二量体が50%と、636-二量体が50%	16.7	4.75

二量体混合物(部材I)は、二量体顔料成分を単独で用いたいずれの場合より、感光度の向上(すなわち、 $E_{1/2}$  値の低下)が見られた。

【0057】実施例11.

#### 装置試験3

##### 二量体混合物の組成による感光度の変化

主に、電子写真性能に対する二量体混合物の組成の影響

を見るため、合成例1及び2の535-二量体と5'35'-二量体の配合比を変えた、一連の感光性画像形成部材を前記と同様に製造した。光発生層における組成と、対応する電気的特性を表4に示した。

【0058】

【表4】

画像形成部材	光発生層における535:5'35'-二量体の重量比	暗失活(V/秒)	$E_{1/2}$ (エルグ/平方cm)
J	100 : 0	6.9	4.37
K	0 : 100	10.4	6.98
L	40 : 60	8.2	3.76
M	50 : 50	10.2	3.58
N	60 : 40	12.4	3.73

二量体混合物を含む3つの部材L、M、Nは、535-二量体又は5'35'-二量体のいずれよりも高い感光度(低い $E_{1/2}$  値)であった。5'35'単独の装置Kと比べて、二量体混合物の装置L、M、Nでは、40%以上も感光度の向上が見られた。より感度の高い成分、すなわち装置Jの535-二量体と比べても、二量体混合物は感度を約14~20%上げることができた。

【0059】実施例12.

#### 装置試験4

##### 非対称型結合を持つ二量体の混合物

4種の、一般的に構造式2で示される、非対称型結合を持つペリレン二量体の評価を行った。二量体Aは、X-

Y結合がエチルベンゼンで、Rがn-ペンチルであり、二量体Bは、X-Y結合がジフェニルエーテルで、Rがn-ペンチルであり、二量体Cは、X-Y結合が2-メチルペンタンで、Rがn-ブチルであり、二量体Dは、X-Y結合が2-メチルペンタンで、Rがn-ペンチルである。前記と同様に、1種の二量体を含む画像形成部材と、2種の二量体混合物を含む画像形成部材を製造し、電子写真性能を評価した。光発生層における組成と、対応する電気的特性を表5に示した。

【0060】

【表5】

画像形成部材	光発生層中における 顔料の組成(重量%)	暗失活 (V/秒)	$E_{1/2}$ (エルグ/平方cm)
O	二量体Aが100% (構造式2、 X-Y: エチルベンゼン、 R: n-ペンチル)	22.8	10.48
P	二量体Bが100% (構造式2、 X-Y: ジフェニルエーテル、 R: n-ペンチル)	20.0	7.69
Q	二量体Cが100% (構造式2、 X-Y: 2-メチルペンタン、 R: n-ブチル)	9.7	6.13
R	二量体Dが100% (構造式2、 X-Y: 2-メチルペンタン、 R: n-ペンチル)	15.1	3.59
S	二量体Aが50%と、 二量体Dが50%	11.7	5.39
T	二量体Bが50%と、 二量体Dが50%	17	5.29
U	二量体Cが50%と、 二量体Dが50%	11.6	4.30

この表の結果より、二量体混合物を用いて、設定した又は  
は予定した所望の値に感光度を調整できることが分かつた。

#### フロントページの続き

(72) 発明者   アー   ミー   ホー  
          カナダ   オンタリオ   ミッシソーガ   マル  
          キャスター   ロード   3407  
(72) 発明者   ジェームス   エム   ダフ  
          カナダ   オンタリオ   ミッシソーガ   モン  
          デヴィデオ   ロード   6185

(72) 発明者   ジュセパ   バラニー  
          カナダ   オンタリオ   ミッシソーガ   フォ  
          ークウェイ   ドライブ   2623  
(72) 発明者   シー   ジョフリー   アレン  
          カナダ   オンタリオ   ウォーターダウン  
          ヒースフィールド   クレセント   8